



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 04009371 A

(43) Date of publication of application: 14.01.1992

(51) Int. Cl. C07D233/52  
A01N 43/50(21) Application number: 02109441  
(22) Date of filing: 25.04.1990(71) Applicant: ISHIHARA SANGYO KAISHA LTD  
(72) Inventor: TOKI TADAAKI  
KOYANAGI TORU  
OKADA HIROSHI  
YOSHIDA KIYOMITSU  
SASAKI HIROSHI  
MORITA MASAYUKI(54) NITROIMINO-BASED COMPOUND,  
PRODUCTION THEREOF AND  
PEST-CONTROLLING AGENT CONTAINING  
SAME COMPOUND

with a compound of formula III (Hal is halogen) to obtain the objective compound of formula I.

COPYRIGHT: (C)1992,JPO&amp;Japio

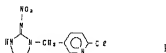
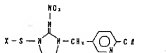
(57) Abstract:

NEW MATERIAL: Compounds of formula I [X is -SO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>, -CO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>, -NR<sup>2</sup>R<sup>3</sup>, -SO<sub>2</sub>R<sup>4</sup>, CO<sub>2</sub>R<sup>4</sup>, -COR<sup>4</sup>, -COCO<sub>2</sub>R<sup>4</sup> or -SO<sub>2</sub>NR<sup>5</sup>R<sup>6</sup> (R<sup>1</sup>-R<sup>6</sup> are alkylene which may be substituted or aryl which may be substituted, R<sup>5</sup>, together R<sup>5</sup> and R<sup>6</sup>, together R<sup>6</sup> may form alkylene which may be substituted)] or salts thereof.

EXAMPLE: Methyl N-[[3-(2-chloro-5-pyridyl)methyl-2-nitroimino]-1-imidazolidinyl]thio]-N-methylcarbamate.

USE: Useful as a pest-controlling agent.

PREPARATION: A compound of formula II is reacted

R<sup>1</sup> R<sup>2</sup> - S - X

⑫ 公開特許公報(A) 平4-9371

⑬ Int. Cl.<sup>8</sup>

C 07 D 233/52

A 01 N 43/50

識別記号

庁内整理番号

Q

7180-4C

8930-4H

⑭ 公開 平成4年(1992)1月14日

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全11頁)

⑮ 発明の名称 ニトロイミノ系化合物、それらの製造方法及びそれらを含む有  
害生物防除剤

⑯ 特 願 平2-109441

⑰ 出 願 平2(1990)4月25日

⑱ 発 明 者 土 岐 忠 昭 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社  
中央研究所内

⑲ 発 明 者 小 柳 敏 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社  
中央研究所内

⑳ 発 明 者 岡 田 宏 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社  
中央研究所内

㉑ 出 願 人 石原産業株式会社 大阪府大阪市西区江戸堀1丁目3番22号  
最終頁に続く

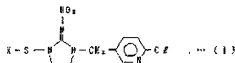
明 細 書

1. 発明の名称

ニトロイミノ系化合物、それらの製造方法及び  
それらを含む有害生物防除剤

2. 特許請求の範囲

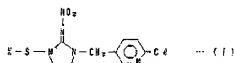
1. 一般式(1)



(式中、Xは-SO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>基(R<sup>1</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、-CO<sub>2</sub>R<sup>2</sup>基(R<sup>2</sup>は前述の通りである)又は-NR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>基(R<sup>3</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、R<sup>4</sup>は置換されてもよいアルキル基、置換されてもよいアリール基又は置換されてもよいアリール基である)、-CO<sub>2</sub>R<sup>5</sup>基(R<sup>5</sup>は前述の通りである)、

-COR<sup>6</sup>基(R<sup>6</sup>は前述の通りである)、-OCO<sub>2</sub>R<sup>7</sup>基(R<sup>7</sup>は前述の通りである)、-SO<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup>基(R<sup>8</sup>及びR<sup>9</sup>は各々独立して置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、R<sup>8</sup>及びR<sup>9</sup>は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい)又は-CO<sub>2</sub>NR<sup>10</sup>基(R<sup>10</sup>及びR<sup>11</sup>は前述の通りである)であり、R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい)である)で表わされるニトロイミノ系化合物又はそれらの塩。

2. 一般式(1)



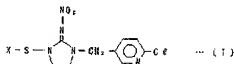
(式中、Xは-SO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>基(R<sup>1</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、-CO<sub>2</sub>R<sup>2</sup>基(R<sup>2</sup>は前述の通りである)又は-NR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>基(R<sup>3</sup>は置換されてもよいアルキ

ル基又は置換されてもよいアリール基であり、 $R^2$ は置換されてもよいアルキル基、置換されてもよいアリール基、 $-SO_2R^4$ 基( $R^4$ は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、 $-CO_2R^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-COR^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-COCOR^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-SO_2NR^4R^5$ 基( $R^4$ 及び $R^5$ は各々独立して置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、 $R^2$ 及び $R^3$ は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい)又は $-CONR^4R^5$ 基( $R^4$ 及び $R^5$ は前述の通りである)であり、 $R^2$ 及び $R^3$ は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい(である)で表わされるニトロイミノ系化合物又はそれら塩を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤。

### 3. 一般式(II)

及び $R^4$ は各々独立して置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、 $R^2$ 及び $R^3$ は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい)又は $-CONR^4R^5$ 基( $R^4$ 及び $R^5$ は前述の通りである)であり、 $R^2$ 及び $R^3$ は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい(である)で表わされる化合物とを反応させることを特徴とする

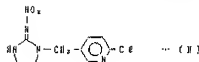
#### 一般式(1)



(式中、Xは前述の通りである)で表わされるニトロイミノ系化合物又はそれらの塩の製造方法。

### 3. 発明の詳細な説明 (産業上の利用分野)

本発明は新規なニトロイミノ系化合物、それらの製造方法及びそれらを含む有害生物防除剤



で表わされる化合物と

#### 一般式(III)



(式中、Eはハロゲン原子であり、Xは $-SO_2R^4$ 基( $R^4$ は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、 $-CO_2R^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)又は $-NR^4R^5$ 基( $R^4$ は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、 $R^2$ は置換されてもよいアルキル基、置換されてもよいアリール基、 $-SO_2R^4$ 基( $R^4$ は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、 $-CO_2R^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-COR^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-COCOR^4$ 基( $R^4$ は前述の通りである)、 $-SO_2NR^4R^5$ 基( $R^4$

に関する。

(先行技術及び発明に至った経緯)

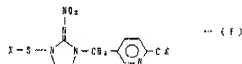
特開昭62-81392号、特開昭63-150788号などには、ニトロイミノ系化合物が殺虫剤などの有効成分として有用である旨開示されている。しかしながらそこには一般式(1)で表わされる本発明化合物のようにそのイミノ基に $-S-X$ 基を置換基に持つ化合物については開示されていない。

本発明は特定のニトロイミノ系化合物が高い有害生物防除効果を示すとの知見に基づく。

#### 〈発明の開示〉

本発明は、次記一般式(1)で表わされるニトロイミノ系化合物又はそれらの塩、それらの製造方法及びそれらを含む有害生物防除剤に関する。

#### 一般式(1)



〔式中、Xは-SO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>基(R<sup>1</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、-CO<sub>2</sub>R<sup>1</sup>基(R<sup>1</sup>は前述の通りである)又は-NR<sup>2</sup>R<sup>3</sup>基(R<sup>2</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、R<sup>3</sup>は置換されてもよいアルキル基、置換されてもよいアリール基、-SO<sub>2</sub>R<sup>4</sup>基(R<sup>4</sup>は置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基である)、-CO<sub>2</sub>R<sup>4</sup>基(R<sup>4</sup>は前述の通りである)、-COR<sup>4</sup>基(R<sup>4</sup>は前述の通りである)、-COO<sub>2</sub>R<sup>4</sup>基(R<sup>4</sup>は前述の通りである)、-SO<sub>2</sub>NR<sup>2</sup>R<sup>3</sup>基(R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>は各自独立して置換されてもよいアルキル基又は置換されてもよいアリール基であり、R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい)又は-CO<sub>2</sub>NR<sup>2</sup>R<sup>3</sup>基(R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>は前述の通りである)であり、R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>は一緒になって置換されてもよいアルキレン基を形成してもよい〕である。

前記一般式(1)中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>に含まれる置換されてもよいアルキ

ル基及び置換されてもよいアルキレン基の置換基としては、ハロゲン原子、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、ハロゲン化アルコキシカルボニル基、アルキルカルボニル基、ハロゲン化アルキルカルボニル基、アルキルスルホニル基、ハロゲン化アルキルスルホニル基、アリール基などが挙げられ、また、それらの置換されてもよいアリール基の置換基としては前記置換されてもよいアルキル基及び置換されてもよいアルキレン基の置換基として挙げたものに加え、アルキル基、ハロゲン化アルキル基、シアノ基、ニトロ基などが挙げられる。そしていずれの置換基についても、置換基の数が2面以上の場合、それらは同一であっても異なってもよく、さらに前記ハロゲン化アルキル基及びハロゲン化アルコキシ基においてはそれらが2ヶ以上のハロゲン原子でハロゲン化されている場合そのハロゲン原子は同一であっても異なってもよい。

前記一般式(1)に含まれるアルキル基としては、炭素数1〜8のもの、例えば、メチル基、エ

チル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基などが挙げられ、また、それらは直鎖又は枝分れ鎖の構造異性体のものを含む。アルキレン基としては炭素数1〜6のもの例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などが挙げられる。

前記一般式(1)に含まれるアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられる。

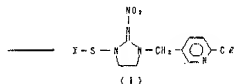
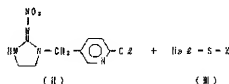
前記一般式(1)に含まれるハロゲン原子としては、例えばホウ素原子、塩素原子、臭素原子、フッ素原子が挙げられる。

前記一般式(1)で表わされる化合物の塩としては、それらと酸性物質との付加塩が挙げられ、例えば、塩酸塩、臭化水素酸塩、リン酸塩、硫酸塩、硝酸塩のような無機酸塩などが挙げられる。

前記一般式(1)で表わされる化合物には、立体、乙体の異性体が存在するが、本発明にはは立体、乙体及びそれらの混合物も包含される。

前記一般式(1)で表わされる化合物は、例え

ば、次の方法によって製造される。



〔式中、H<sub>2</sub>はハロゲン原子であり、Xは前述の通りである〕

前記反応は塩基の存在下で行なわれるのが望ましく、塩基としては、n-ブチルリチウム、tert-ブチルリチウム、フェニルリチウムなどの有機リチウム化合物、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、水素化カリウムなどの無機塩基、トリエチルアミン、ピリジンなどの有機塩基などが挙げられる。更には、これらの反応

は、溶媒の存在下で行なわれるのが望ましく、溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼンなどの芳香族炭化水素類；ヘキサン、シクロヘキサンなどの環状又は非環状脂肪族炭化水素類；ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類；アセトニトリル、プロピオニトリル、ブタリロニトリルなどのニトリル類；ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、スルホラン、ヘキサメチル硫酸トリアミドなどの非プロトン性極性溶媒などが挙げられる。

前記反応の反応温度は通常-80℃～溶媒の沸点温度、望ましくは0℃～30℃であり、反応時間は0.1～4.8時間である。

次に本発明化合物の具体的な合成例を記載する。

#### 合成例 1

メチル N-(3-(2-クロロ-5-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)-1-イミダゾリジニル)チオ-N-メチルカルバマート(化合物1)の合成

-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)-1-イミダゾリジニル)チオ-N-アプロビルカルバマート(化合物2)の合成

1-(2-クロロ-5-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)イミダゾリジン1.55gをN,N-ジメチルホルムアミド150ml中に溶解させ室温で60%水素化ナトリウム0.27gを添加した。室温で30分間攪拌した後、イソプロピルN-クロロスルフェニル-N-アプロビルカルバマート1.93gを加えて室温で1時間攪拌した。反応混合物を水中に投入し、塩化メチレンで抽出した後無硫酸ナトリウムで乾燥し、塩化メチレンを留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：酢酸エチル)により精製して、精製物の目的物(化合物2)0.20gを得た。

#### 目的物のNMR値

<sup>1</sup>H-NMR(CDC<sub>3</sub>) δ: 0.88(t, J=7Hz, 3H), 1.29(d, J=6Hz, 6H), 1.58-1.66(m, 2H), 3.51(t, J=9Hz, 2H), 3.63(t, J=7Hz, 2H), 4.05(t, J=9Hz, 2H), 4.51(s,

1-(2-クロロ-5-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)イミダゾリジン0.5gをN,N-ジメチルホルムアミド50ml中に溶解させ、室温で60%水素化ナトリウム86mgを添加した。室温で30分間攪拌した後、メチルN-クロロスルフェニル-N-メチルカルバマート0.33gを加えて室温で1時間攪拌した。反応混合物を水中に投入し、塩化メチレンで抽出した後無硫酸ナトリウムで乾燥し、塩化メチレンを留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：酢酸エチル)により精製して、非晶形白色固体の目的物(化合物1)0.24gを得た。

#### 目的物のNMR値

<sup>1</sup>H-NMR(CDC<sub>3</sub>) δ: 3.39(s, 3H), 3.57(t, J=9Hz, 2H), 3.81(s, 3H), 4.07(t, J=9Hz, 2H), 4.54(s, 2H), 7.38(d, J=8Hz, 1H), 7.76(dd, J=8Hz及び2Hz, 1H), 8.33(d, J=2Hz, 1H)

#### 合成例 2

イソプロピル N-(3-(2-クロロ-5-

ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)-1-イミダゾリジニル)チオ-N-アプロビルカルバマート(化合物2)の合成

#### 合成例 3

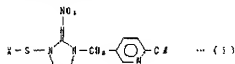
イソプロピル N-(3-(2-クロロ-5-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)-1-イミダゾリジニル)チオ-N-メチルカルバマート(化合物4)の合成

1-(2-クロロ-5-ピリジル)メチル-2-(ニトロイミノ)イミダゾリジン1.0gをN,N-ジメチルホルムアミド100ml中に溶解させ、室温で60%水素化ナトリウム172mgを添加した。室温で30分間攪拌した後、イソプロピルN-クロロスルフェニル-N-メチルカルバマート1.93gを加えて室温で1時間攪拌した。反応混合物を水中に投入し、塩化メチレンで抽出した後、無硫酸ナトリウムで乾燥し、塩化メチレンを留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：酢酸エチル：n-ヘキサン=9:1)により精製して油状物の目的物(化合物4)0.41gを得た。

## 臭化物のNMR 値

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$ : 1.32(d,  $J=6\text{Hz}$ , 6H), 3.37(s, 3H), 3.54(t,  $J=9\text{Hz}$ , 2H), 4.05(t,  $J=9\text{Hz}$ , 2H), 4.53(s, 2H), 4.90-5.06(m, 1H), 7.36(d,  $J=8\text{Hz}$ , 1H), 7.70(dd,  $J=8\text{Hz}$ 及び2H), (D), 8.32(d,  $J=2\text{Hz}$ , 1H)

次に前記一般式(1)で表わされる化合物の代表例を第1表に記載する。



| 化合物No | X  | 物 性         |
|-------|--|-------------|
| 1     | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                       | 非晶形<br>白色固体 |
| 2     | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2 \end{matrix}$ | 油状物         |
| 3     | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$              |             |

| 化合物No | X  | 物 性 |
|-------|--|-----|
| 4     | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2 \end{matrix}$          | 油状物 |
| 5     | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$              |     |
| 6     | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$              |     |
| 7     | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$              |     |
| 8     | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$     |     |
| 9     | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2 \end{matrix}$ |     |
| 10    | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$     |     |
| 11    | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$     |     |
| 12    | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$              |     |

| 化合物No | X  | 物 性 |
|-------|--|-----|
| 13    | $\begin{matrix} \text{CH}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                                |     |
| 14    | $\begin{matrix} \text{CH}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$                       |     |
| 15    | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                                    |     |
| 16    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$   |     |
| 17    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$                                    |     |
| 18    | $\begin{matrix} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$                                      |     |
| 19    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CO}_2\text{CH}_2\text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$              |     |
| 20    | $\begin{matrix} \text{CH}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{CH}_2\text{CH}_2\text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$ |     |

| 化合物No | X   | 物 性 |
|-------|---|-----|
| 21    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CH}_2\text{CH}_2\text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$ |     |
| 22    | $\text{SO}_2\text{CH}_3$  |     |
| 23    | $\text{CO}_2\text{CH}_3$  |     |
| 24    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{SO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                                |     |
| 25    | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{COCH}_3 \end{matrix}$   |     |
| 26    | $\text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5$   |     |
| 27    | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CO}_2\text{C}_2\text{H}_5 \end{matrix}$                       |     |
| 28    | $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\   \\ \text{COCO}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                              |     |
| 29    | $\begin{matrix} \text{CH}_2 \\   \\ \text{SO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3 \end{matrix}$                     |     |

| 化合物名 | X  | 物 性 |
|------|--|-----|
| 30   | $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \\   \\ \text{CO} \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$ |     |
| 31   | $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$                   |     |

本発明化合物は有害生物防除剤の有効成分として優れた活性を示す。

例えば、ナミハダニ、エセナミハダニ、ミカンハダニ、ネダニなどのような植物寄生性ダニ類、コナガ、ヨトウムシ、ハスモンヨトウ、コドリシガ、ボールワーム、タバコパッドワーム、マイマイガ、コロラドハムシ、ウリハムシ、ボールウィービル、アブラムシ類、ウンカ類、ヨコバイ類、カイガラムシ類、カメムシ類、コナジラミ類、アザミウマ類、バッタ類、ハナバエ類、コガネムシ類、タマナヤガ、カブラヤガ、アリ類などのような農業害虫類、イエダニ、ゴキブリ類、イエバエ、アカイエカのような衛生害虫類、バクガ、アズキゾウムシ、コクサストモドキ、ゴミムシダマシ類などのような貯蔵害虫類、イガ、ヒメカツオブシムシ、シロアリ類などのような衣類、家屋害虫類、その他家畜などに寄生するノミ類、シラミ類、ハエ類などに対しても有効であり、更にはネコバセンチュウ類、シストセンチュウ類、ネグサレセンチュウ類、イネシガラセンチュウ、イチゴゴメ

シチュウ、マツノザイセンチュウなどのような植物寄生性線虫類に対しても有効である。また、土壌害虫類に対しても有効である。ここに言う土壌害虫としては、ナメタジ、マイマイのような環足類、ダンゴムシ、ワラジムシなどのような等脚類などがあげられる。更にジコホル（商品名：武田薬品工業株式会社）及び有機リン剤抵抗性の植物寄生性ダニ類、有機リン剤抵抗性のアブラムシ類、イエバエなどの害虫に対しても有効である。さらに本発明化合物は、優れた浸透移行性を有していることから、本発明化合物を土壌に処理することによって土壌害虫線虫類、ダニ類、線虫類、環足類、等脚類の防除と同時に高濃度の密虫類をも防除することができる。

本発明化合物を有害生物防除剤の有効成分として使用する場合に際しては、従来の農薬の製剤の場合と同様に農薬補助剤と共に乳剤、粉剤、粒剤、水和剤、液剤、エアゾール剤、ペースト剤などの種々の形態に製剤することができる。これらの配合割合は通常有効成分0.5～90重量部で農薬補助

剤10～99.5重量部である。これらの製剤の実際の使用に際しては、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈して使用することができる。

ここにはいう農業補助剤としては、団粒、乳化剤、懸濁剤、分散剤、展着剤、浸透剤、濡潤剤、増粘剤、安定剤などが挙げられ、必要により適宜添加すればよい。団粒としては、団粒団粒と液体団粒に分けられ、団粒団粒としては、澱粉、活性炭、火薬粉、小麦粉、木粉、魚粉、乳粉などの動物性粉体、タルク、カオリン、ベントナイト、炭酸カルシウム、ゼオライト、珪藻土、ホワイトカーボン、クレイ、アルミナ、珪酸結晶などの鉱物性粉体などが挙げられ、液体団粒としては、水、メチルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、ケロシン、灯油などの脂肪族炭化水素類、キシレン、トリメチルベンゼン、テトラメチルベンゼン、シクロヘキサン、ソルベントナ





シリルイミド、メチルアミンのような化合物；イソプロピルイミド（2E、4E）-1-1-メチル-2-ヒン-3,7,11-トリメチル-2,4-エドケドジエノエートのような功効ホルモンの様化合物；また、その他の化合物として、ジニトロ系化合物、有機硫黄化合物、炭素系化合物、トリアジン系化合物などが挙げられる。更に、B-27阻、昆虫誘殺フェル素剤などのような殺生物殺菌剤などと、混用、併用することである。

例えば、殺菌剤としては、S-ベンジル-6,0-ジイソプロピル-β-D-スホロホスホネート、O-フェニル、S-β-D-グルフェニルスホロホスホネート、アルミニウムエチルハイドロゲンスホネートのような農薬系化合物；4,5,6,7-テトラクロロフタリド、テトラクロロイソフタルニトリルのような有機窒素系化合物；マンガニンエチレンビス（ジチオカーバメート）の重合物、ジシアンとマンブンの錯化合物、ジシクロビス（メチルジチオカーバメート）エチレンビス（ジチオ

カーバメイト)、ジテラプロピレンビス(ジチオ  
カーバメイト)の置換物のようなジチオカーバメ  
イト系化合物: 3,4,7,7a-テトラヒドロ-N-  
(トリクロロメチルチルスルフェニル)フタルイミド  
20, 4,7,7a-テトラヒドロ-N-(1,1,2,2-ジ  
テトラクロロエチルスルフェニル)フタルイミド、  
N-(トリクロロメチルスルフェニル)フタルイ  
ミドのようなN-ハロゲンチアルケル系化合物:  
3-(3,5-ジクロロフェニル)-N-イソプロ  
ピル-2,4-ジオキソイミダゾリジン-1-カル  
ボキサンチド、(RS)-3-(3,5-ジクロロフェニ  
ル)-5-メチル-N-ギンズリン-1,3-オキサン  
ジリジン-2,4-ジオン、N-(3,5-ジクロロフ  
ェニル)-1,2-ジメチルシクロプロパン-1,2  
-ジカルボキシドのようなジカルボキシミド系  
化合物: メチル-1-(チルチルホスフェイル)ベン  
ゼイミダゾール-2-イルカルバメイト、ジメチ  
ル4'--(フェニル)ビス(3-チチ  
ロフファネール)のようなベンゼイミダゾール系  
化合物: 1-(イクロロベンゾイミダゾール)-3,3'-ジ

メサル-1 = (1H-1,2,4-トリアゾール-1-イル) プラノン、1 = (ピラニール-4-イル) オキシン-3,3'-ジメサル-1 = (1H-1,2,4-トリアゾール-1-イル) プタン-2-サル、1 = (N-(4-クロロ-2-トリフルオロメチルフェニル)-2-プロポキシシアセトイミドイル) イタダゾール、1 = (2-(2,4-ジクロロフェニル)-4-エチル-1,3-ジオキソラン-2-イル) メサル-1H-1,2,4-トリアゾール、1 = (2-(2,4-ジクロロフェニル)-4-プロピル-1,3-ジオキソラン-2-イル) メサル-1H-1,2,4-トリアゾール、1 = (2-(2,4-ジクロロフェニル)ベンチル) = 1H-1,2,4-トリアゾールによるアゾール系化合物、2,4'-ジプロロ-α-(ピリミジン-5-イル) ベンズヒドリルアルコル、(2) = 2,4'-ジフルオロ-α-(1H-1,2,4-トリアゾール-1-イル) ベンチル) ベンズヒドリルアルコルのようなカルビノール系化合物、3'-イソプロキシ-9-トリフルオロ、α、α'-トリフルオロ

ロ-3'-イソプロピルキシ-6-トルアミドの  
ようなベンズアミド系化合物：メチル-N-(2-  
メトキシアセチル)-N-(2,6-ピリロ)  
-1-エチル-N-エトのようなフェニル系アミド系  
化合物：3-クロロ-N-(3-クロロ-2,6-  
ピロ-4- $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\alpha$ -トリフルオロメチル)-  
5-トリフルオロメチル-2-ピリジナミンの  
ようなピリジナミン系；またその他化合物とし  
て、ピペラジン系化合物、モルフォリン系化合物、  
アントラquin系化合物、キノキサリン系化合物、  
ピラントリン系化合物、スルホン酸系化合物、尿  
素系化合物、糖化合物等があげられる。

本発明の有害生物防除剤の施用は、一般に1~20,000ppm、望ましくは20~2,000ppmの有効成分濃度で行なう。これらの有効成分濃度は、薬剤の形態及び施用する方法、目的、時期、場所及び害虫の発生状況等によって適当に変更できる。例えば、水生有害虫の場合、上記濃度範囲の薬液を魚池・養魚場等に散布しても効果であることから、水中での有効成分濃度範囲は上記以下である。単位面積

あたりの施用量は 10 a 当たり、有効成分化合物として約 0.1 ~ 5,000 g、好ましくは 10 ~ 1,000 g が使用される。しかし、特別の場合には、これらの範囲を逸脱することも可能である。

本発明の化合物を含有する態々の製剤、またはその希釈物の施用は、通常一般に行なわれている施用方法すなわち、散布（例えば散布、噴霧、ミステイキング、アトマイジング、散粒、水面施用等）、土壌施用（播入、播種等）、表面施用（散布、粉衣、被覆等）、浸漬等部等により行うことができる。また、害虫に対して前記有効成分を飼料に混合して与え、その排泄物での有害虫、特に有害昆虫の発生生育を防止することも可能である。またいわゆる超高温微量散布法 (ultra low volume) により施用することもできる。この方法においては、活性成分を 100% 含有することが可能である。

#### 試験例 1 ヒメトビウガの殺虫試験

有効成分濃度 800 ppm に調整した薬液にイネ幼苗を約 10 秒間浸漬し、風乾した後播いた。

虫の寄生したナス莢を前記の濃度に調整した薬液に約 10 秒間浸漬処理し、風乾後 26℃ の照明付恒温器内に設置した。放虫後 5 日目に生死を判定し、下記の計算式により死虫率を求めた。なお、脱殻虫は死亡したものとみなした。

$$\text{死虫率 (\%)} = \frac{\text{死虫数}}{\text{脱殻虫数}} \times 100$$

化合物 1、2 及び 4 が 100% の死虫率を示した。

#### 試験例 4 モモアカアブラムシの浸漬移行性試験

有効成分化合物のそれぞれの製剤品を水に分散させ、濃度を 800 ppm に調整した。ナスの本葉 1 枚だけを残したものをカップ（直径 8 cm、高さ 7 cm）に移殖し、これにモモアカアブラムシ無翅胎生雌成虫を 2 ~ 3 頭接種し、飼育させた。接種 2 日後成虫を除去し、幼虫数を数えた。この幼虫の寄生したナスに、前記の濃度に調整した薬液 10 ml を土壌澆注処理し、26℃ の照明付恒温器内に設置した。処理 5 日後に生死を判定し、前記試験例 3 の場合と同様にして死虫率を求めた。

播で殺虫剤を混ぜた試験管に入れた。次いで、この中へヒメトビウガの幼虫 10 頭を放ち、管口にガーゼでふたをして 26℃ の照明付恒温器内に設置した。放虫後 5 日目に生死を判定し、下記の計算式により死虫率を求めた。

$$\text{死虫率 (\%)} = \frac{\text{死虫数}}{\text{脱殻虫}} \times 100$$

化合物 1 及び 2 が 100% の死虫率を示した。

#### 試験例 2 ツマグロコバエの殺虫試験

ヒメトビウガの幼虫をツマグロコバエの幼虫に代えること以外は、前記試験例 1 の場合と同様にして試験を行ない、死虫率を求めた。

化合物 1 及び 2 が 100% の死虫率を示した。

#### 試験例 3 モモアカアブラムシ殺虫試験

有効成分化合物のそれぞれの製剤品を水に分散させ、濃度を 800 ppm に調整した。ナスの本葉 1 枚だけを残したものをカップ（直径 8 cm、高さ 7 cm）に移殖し、これにモモアカアブラムシ無翅胎生雌成虫を 2 ~ 3 頭接種し、飼育させた。接種 2 日後成虫を除去し、幼虫数を数えた。この幼

虫、脱殻虫は死亡したものとみなした。

化合物 1 及び 2 が 100% の死虫率を示した。

#### 試験例 5 ハスモンヨトウの殺虫試験

有効成分化合物のそれぞれの製剤品を水に分散させ 800 ppm の濃度に調整した薬液に、4 x 6 cm のペトリ皿に運った葉片を数枚、その上に風乾した葉片を置いた。そこへ 2 ~ 3 羽のハスモンヨトウ幼虫 10 頭を放ち、ふたをして 26℃ の照明付恒温器内に設置した。放虫後 5 日目に生死を判定し、前記試験例 1 の場合と同様にして死虫率を求めた。

化合物 1、2 及び 4 が 100% の死虫率を示した。

次に本発明の製剤例を記載するが、本発明における化合物、配合割合、剤型などは記載例のみに限定されるものではない。

#### 製剤例 1

|           |        |
|-----------|--------|
| (イ) 化合物 1 | 20 重量部 |
| (ロ) カオリン  | 72 重量部 |

(ハ) リガニンスルホン酸ソーダ 8 重量部  
以上のものを均一に混合して水和剤とする。

## 製剤例 2

(イ) 化合物No. 2 5 重量部  
(ロ) タルク 9.5 重量部

以上のものを均一に混合して粉剤とする。

## 製剤例 3

(イ) 化合物No. 2 2.0 重量部  
(ロ) H<sub>2</sub>N-ノージメチルホルムアミド 2.0 重量部

(ハ) ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル 1.0 重量部  
(ニ) キシレン 5.0 重量部

以上のものを均一に混合、溶解して乳剤とする。

## 製剤例 4

(イ) カオリン 6.8 重量部  
(ロ) リガニンスルホン酸ソーダ 2 重量部

(ハ) ポリオキシエチレンアルキルアリール  
ルフェート 5 重量部  
(ニ) 微粉シリカ 2.5 重量部

以上のものを均一に混合、粉砕した原液に更に

(ホ) ポリカルボン酸ナトリウム 5 重量部

(ヘ) 無水硫酸ナトリウム 42.8 重量部  
を加え均一に混合、乾燥してドライフロアブル剤とする。

## 製剤例 7

(イ) 化合物No. 4 5 重量部  
(ロ) ポリオキシエチレンオクタシルフェニルエーテル 1 重量部

(ハ) ポリオキシエチレンの誘導エステル 0.5 重量部  
(ニ) 粒状炭酸カルシウム 93.5 重量部

(イ) ~ (ハ) を予め均一に混合し、適量のアセトンで希釈した後、(ニ) に吹付け、アセトンを除去して粒剤とした。

## 製剤例 8

(イ) 化合物No. 2 2.5 重量部  
(ロ) N-メチル-2-ピロリドン 2.5 重量部

(ハ) 大豆油 95.0 重量部

以上の各成分の混合物と、化合物No. 1 とを 4 : 1 の重量割合で混合し、水和剤とする。

## 製剤例 5

(イ) 化合物No. 1 4.0 重量部  
(ロ) オキシレーテッドポリアルキルフェニル  
ルフォスフェートトリエタノールアミ

ン 2 重量部  
(ハ) シリコーン 0.2 重量部

(ニ) ザンサンガム 0.1 重量部  
(ホ) エチレングリコール 5 重量部

(ヘ) 水 52.7 重量部

以上のものを均一に混合、粉砕してフロアブル剤とする。

## 製剤例 6

(イ) 化合物No. 1 5.0 重量部  
(ロ) オキシレーテッドポリアルキルフェニル  
フォスフェートトリエタノールアミ

ン 2 重量部  
(ハ) シリコーン 0.2 重量部

(ニ) 水 47.8 重量部

以上のものを均一に混合、溶解して微懸液布剤 (ultra low volume formulation) とする。

## 製剤例 9

(イ) 化合物No. 4 5 重量部  
(ロ) H<sub>2</sub>N-ノージメチルホルムアミド 1.5 重量部

(ハ) ポリオキシエチレンアルキルアール  
(aryl) エーテル 1.0 重量部

(ニ) キシレン 7.0 重量部

以上のものを均一に混合し乳剤とする。

特許出願人 石原産業株式会社

第1頁の続き

- ⑨発明者 菅 田 潔 充 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社中央研究所内
- ⑩発明者 佐々木 広 志 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社中央研究所内
- ⑪発明者 森 田 雅 之 滋賀県草津市西洪川2丁目3番1号 石原産業株式会社中央研究所内